

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



(19)

(11) Publication number:

60183121 A

Generated Document.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(21) Application number: 59038398

(51) Intl. Cl.: B29C 55/06

(22) Application date: 29.02.84

(30) Priority:

(43) Date of application
publication: 18.09.85(84) Designated
contracting states:

(71) Applicant: ASAHI CHEM IND CO LTD

(72) Inventor: AOSHIMA ATSUSHI
KOMATSU TAMIKUNI
ENOKI SACHIO

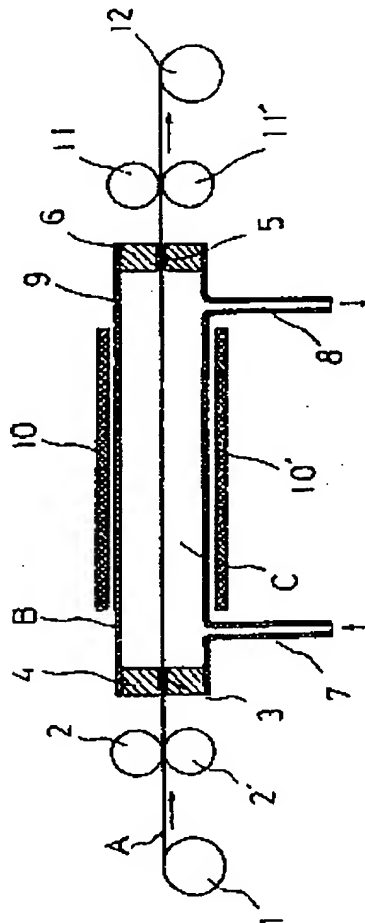
(74) Representative:

**(54) POLYACETAL FORMING
MATERIAL WITH COEFFICIENT
OF HIGH ELASTICITY**

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain polyacetal forming material which has a suppressed fibrillation and is dense and has high coefficient of elasticity by performing drawing under pressure and by stipulating conditions as follow; density 1.20W1.45g/cm³, tensile elasticity X=25W50GPa, rate of change in density 110-0.52X or above.

CONSTITUTION: A long polyacetal sheet A is paid out from a pay-out roller 1 and while the sheet is compressed within a compressed fluid C (silicon oil etc.) under the pressure of 10W1,000kg/cm², it is heated by heaters 10 and 10' and by being wound by a roller 12, it is drawn and magnified 10W30 times without fibrillation. A polyacetal forming material of density 1.20W1.45g/cm³, tensile elasticity X=25W50GPa, rate of change in density 110-0.52X before and after drawing, is obtained. Being superior in dynamic strength in a transverse direction, in density and in coefficient of high elasticity, it is suitable as a rope, a tension member for optical fiber and a recording tape material.



COPYRIGHT: (C)1985,JPO&Japio

⑩ 日本国特許庁(J.P.)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

昭60-183121

⑬ Int. Cl.⁴ 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公開 昭和60年(1985)9月18日
B 29 C 55/06 7425-4F
// C 08 J 5/00 C E Z 7446-4F
B 29 K 59:00 4F 審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

⑮ 発明の名称 高弾性率ポリアセタール成形材料

⑯ 特 願 昭59-38398

⑰ 出 願 昭59(1984)2月29日

⑱ 発 明 者 青 島 淳 富士市鯉島2番地の1 旭化成工業株式会社内
⑲ 発 明 者 小 松 民 邦 富士市鯉島2番地の1 旭化成工業株式会社内
⑲ 発 明 者 榎 左 千 夫 富士市鯉島2番地の1 旭化成工業株式会社内
⑳ 出 願 人 旭化成工業株式会社 大阪市北区堂島浜1丁目2番6号
㉑ 代 理 人 弁理士 阿 形 明

明 細 書

1 発明の名称 高弾性率ポリアセタール成形材料

2 特許請求の範囲

- 1 密度 $1.20 \sim 1.45 \text{ g/cm}^3$ 、引張弾性率
25 ~ 50 GPa を有し、かつ引張弾性率を x (GPa)、
密度変化率を y (%) としたときに、

$$y \geq 110 - 0.52x$$

の関係を満たすことを特徴とする高弾性ポリアセ
タール成形材料。

3 発明の詳細な説明

本発明は、ち密で高弾性率の新規なポリアセ
タール成形材料に関するものである。さらに詳しく
いえば、本発明は、引張弾性率、引張強度、引裂
強度などの分子配向方向における強度が高いた
りでなく、曲げ強度、座屈強度などの分子配向方
向に垂直な方向すなわち横方向における強度も高
いという点で従来のポリアセタール成形材料とは

明らかに異なつた特徴を有する高密度ポリアセ
タール成形材料に関するものである。

ポリアセタールは、ポリオキシメチレンともよ
ばれ、ホルムアルデヒドをイオン重合開始剤によ
つて重合させることにより得られる熱可塑性重合
体であるが、硬さ、剛性、強度、弾性などが比較
的大きく、しかも耐薬品性、耐溶剤性、耐クリー
プ性の優れた表面光沢の良好な材料であるため、
機械部品、パイプ、自動車部品、構造物、各種容
器などとして広く用いられている。

しかしながら、このものは、他のプラスチック
に比較すれば、高い引張弾性率を有するとはいへ
使用目的によつては、さらに高弾性率が要求され
るため、これまでも高弾性率のポリアセタールを
得る方法についての検討がなされてきた。

このような方法としては、例えば常圧下で加熱
しながら2段階で延伸することによつて引張弾性
率を向上させる方法(「ポリマー・エン지니어リ
ング・アンド・サイエンス(Poly. Eng. &
Sci.)」、第14巻、第10号、第682ページ)、

誘電加熱下に超延伸を行つて高弾性率化をはかる方法(特開昭57-208216号公報)などがある。これらの方法によれば35~42 GPaという高い引張弾性率をもつポリアセタールを得ることができるが、延伸中にフィブリル化を生じるため、延伸方向について、裂けやバラチを起したり、横方向の力学的強度の低下、密度の低下を伴うという欠点がある。

その他、延伸法以外に加熱ロールによる圧延や静水圧によるダイス押出を行つてポリアセタールの物性を改善する方法も試みられているが、いずれも得られる製品の引張弾性率は24 GPa以下で低い実用的な方法とはいえない。

また、ポリアセタールその他のプラスチックに対し、その軟化点以上の高温下で高圧をかけ、その後、常温常圧に戻すことにより熱安定性及び透明性を改善する方法も提案されているが(特開昭53-141371号公報)、この方法では、高弾性率化に必要な程度の高延伸を達成することができないため、高い引張弾性率をもつ製品を得ること

ができない。

ところで、近年ポリアセタールは、ロープ、漁網などの産業資材、光ファイバケーブル用のテンションメンバー、あるいは記録テープのベースなどとしての用途が開発された結果、従来のものよりもさらに高い弾性率、引張強度が要求されるとともに、曲げ強度、座屈強度のような横方向に対する強度の向上が要求されるようになってきたにもかかわらず、前記したように従来のポリアセタールは、いずれもこれらの要求にこたえることはできなかった。

このような事情のもとで、本発明者らは、延伸方向のみでなく、横方向の力学的強度の優れたポリアセタールを開発すべく、鋭意研究を重ねた結果、特殊な手段を用いてポリアセタールを加熱、加圧した状態で延伸すれば、延伸中に生じるフィブリル化の抑制と、10倍以上の倍率の高延伸を達成しうること、このようにして高延伸されたポリアセタールは、高密度、高弾性率であるばかりでなく、曲げ強度、座屈強度などのいわゆる横方

向に対する力学的強度も優れていることを見出し、この知見に基づいて本発明をなすに至つた。

すなわち、本発明は、密度 $1.20 \sim 1.45 \text{ g/cm}^3$ 、引張弾性率 $25 \sim 50 \text{ GPa}$ を有し、かつ引張弾性率 \times (GPa)、密度変化率を γ (%)としたときに、

$$\gamma \geq 110 - 0.52x \quad \dots (I)$$

の関係を満たすことを特徴とする高弾性ポリアセタール成形材料を提供するものである。

ここで密度変化率 γ は、ポリアセタールの延伸前の見掛け密度に対する延伸後の見掛け密度の百分率で、次式によつて表わされるものである。

$$\gamma(\%) = \frac{\text{延伸後のポリアセタールの見掛け密度}}{\text{延伸前のポリアセタールの見掛け密度}} \times 100 \quad \dots (II)$$

延伸前については、所定のポリアセタール1gを50ml容ビーカーにとり、窒素気流下、250℃で10分間加熱溶融後、20℃まで放冷した試料で測定した。

本発明のポリアセタールの分子量は15,000~100,000、好ましくは25,000~60,000の範囲

のものがよい。

本発明のポリアセタールは、実際に使用する場合には、必要に応じ他のポリマーや充填剤と混合されることがあるが、このような場合の見掛け密度としては、混合されたポリアセタール以外のものを全て除いた状態のものを意味する。

前記の密度変化率は、フィブリル化を生じて密度が低下したか、否かを判断するパラメータとなるもので、フィブリル化が生じれば生じるほどこの数値は低くなる。第1図は、本発明成形材料の分布領域を示すグラフであり、横軸として引張弾性率を、縦軸として密度変化率をとり、プロットしたものである。図中の実線は、前記の関係式(I)に相当するものである。

この図から明らかなように、本発明成形材料(黒点で示される)はいずれも実線を境として上方に位置し、従来のポリアセタール(白点で示される)とは明確に区別されている。

そして、従来のポリアセタールは、引張弾性率が20 GPaに達する点から著しい密度低下を生じ、例えばこれまで知られている引張弾性率の最高値

である42 GPaでは未延伸時の密度 1.42 g/cm^3 から 1.23 g/cm^3 となつてゐるのに対し、本発明成形材料の場合は、引張弾性率25~42 GPaの範囲において、常に従来の成形材料の見掛け密度以上の値であり、未延伸時の密度 1.42 g/cm^3 と同じものが得られ、また、加圧力を高圧にした時には、密度が 1.45 g/cm^3 のものも得られた。しかも、本発明成形材料には引張弾性率50 GPaのものまで包含されているが、この42~50 GPaという引張弾性率を有するものは、これまで全く知られていなかった。

このように、本発明成形材料が高弾性率であるにもかかわらず、密度低下を生じていないのは、延伸によるフィブリル化を抑制されているためであると考えられる。事実、従来のポリアセタールの高延伸体を顕微鏡で観察すると、多数のフィブリル構造が認められるのに対し、本発明成形材料においては、顕在下したフィブリル構造は実質上認められない。

以上のような特徴を有する本発明成形材料は、

成形体に対し等方的に作用し、均質な圧力下での延伸が可能になるので有利であるし、またこの流体としてあらかじめ加熱したものをを用いれば、該成形体を均一に加熱することができ、延伸を均一に行うことができるので有利である。

これらの流体により加えられる圧力としては通常、 $10 \sim 1000 \text{ kg/cm}^2$ 、好ましくは $100 \sim 800 \text{ kg/cm}^2$ の範囲が選ばれるが、所望ならばさらに高い圧力を用いることもできる。一般に圧力を大きくするほど物性の改善効果は上がる傾向がある。この圧力は少なくとも5秒程度連続的に加えるのが望ましい。

本発明成形材料を得るには、延伸時の温度も重要であり、延伸時の圧力下におけるポリアセタールの軟化点を超えない温度で行うことが必要である。この軟化点は、同じ物質においても圧力の増大に従つて上昇する。軟化点よりも高い温度においてもポリアセタールの延伸は可能であるが、分子配向が十分に進行しないため弾性率が著しく低下する。一般に圧力が 1000 kg/cm^2 までであれば

例えば、通常の方法で製造したポリアセタール成形材料を、加圧流体中に通して加圧し、かつその軟化点を超えない温度に加熱しながら、 $10 \sim 30$ 倍に高延伸することによつて得ることができる。この際の加圧流体としては通常液体を用いるが、所望ならば気体を用いることもできる。この流体は、ポリアセタールに対し不活性であり延伸温度において流動性を示すものである限り、特に制限はない。このような液体の例としては、シリコンオイル、鉱油、植物油、グリセリン、グリース、ポリエチレングリコール、ポリエチレンなどを、また気体の例としては窒素、アルゴン、ネオン、ヘリウムのような不活性ガスや空気などをそれぞれ挙げることができる。そして、この流体を、密封容器中でコンプレッサーなどを用いて加圧したり、あるいは他の場所で加圧状態とした流体を、所定の処理帯域に循環させるなどの手段でポリアセタール成形体と接触させ、これを加圧する。この際、後者のようにして流動状態の流体をポリアセタール成形体と接触させると加圧力が該

処理温度は、 $100 \sim 180^\circ\text{C}$ 好ましくは $150 \sim 170^\circ\text{C}$ と範囲内が適当である。

加熱方法としては、前記したように、加圧流体をあらかじめ所定温度に加熱しておき、これをポリアセタール成形材料と接触するのが好ましいが、その他の方法例えばポリアセタール成形材料と流体との接触する帯域を外部から加熱する方法、ポリアセタール成形材料をあらかじめ加熱してから導入する方法なども用いることができる。この加熱には、気体、液体、固体などを熱媒とする加熱、赤外線などによる輻射加熱、電磁波による加熱など通常の加熱に用いられる任意の手段を用いることができる。

次に、本発明成形材料の製造においては、原料のポリアセタール成形材料を周囲の流体を介して均一加圧し、かつ軟化点を超えない温度に加熱した状態で高延伸することが必要である。そして、弾性率を著しく向上させるには、自然延伸比領域をはるかに超えた $10 \sim 30$ 倍、好ましくは $1.5 \sim 30$ 倍の高倍率で延伸することが必要である。

この倍率が10倍未満では物性の改善は認められないし、また30倍よりも大きくすると切断を生じるおそれがある。

この延伸は、例えば供給ローラと引出ローラとの回転比を変えるなどして、供給速度よりも引出速度を大きくすることによって行うことができる。

次に添付図面に従つて本発明の実施態様の1例を説明する。第2図は、本発明方法を実施するのに好適な装置の説明図であつて、ポリアセタールの長尺シート(A)は繰出ローラ1から供給ローラ2,2'を経て延伸装置(B)へ供給される。この延伸装置は、供給口3を有する保圧部材4と取出口5を有する保圧部材6を両端に備え、かつ供給口側に媒体導入口7を、また取出口側に媒体排出口8をそれぞれ設けた円筒状容器9から構成され、この中は媒体として加圧流体(O)が満たされている。長尺シート(A)は、この延伸装置(B)中を通過する間に、加圧流体(O)により所要の圧力で加圧され、かつ円筒状容器9の外側に配置されたヒーター10,10'により加圧流体(O)を介して加熱されな

がら延伸処理されたのち、取り出され、引取ローラ11,11'を経て巻取ローラ12に巻き取られる。上記の保持部材4,6にそれぞれ設けられた供給口3と取出口5は、長尺シート(A)は円滑に通すが、延伸装置(B)内の圧力低下をもたらないようなシールを有しており、このシールとしては例えば開口と通過物体との間隙から流体を流出させて、その際の圧力損失で保圧するように開口を適度に調整する手段、開口と通過物体との間隙を可及的に狭くしてシールする手段、通過物体に平滑な接触部材を介して密着させる手段などが用いられている。この開口は、常に一定の大きさを有するものでもよいし、また延伸中の通過物体の断面の変化に追従できるように調節しうるものであつてもよい。

次に媒体導入口7から導入される加圧流体と媒体排出口8から排出される加圧流体とはそれぞれ独立に用意してもよいが、エネルギー消費をできるだけ少なくするために、両者を連結し、コンプレッサー、ポンプなどを用いて循環させるのが有

利である。また、加圧流体(O)の加熱は、前記のような円筒状容器9の外側に配置したヒーター10,10'による代りに循環路の適所に設けた加熱器によつて行うこともできる。圧力の調整は、調圧弁など慣用されている手段を用いて行うことができる。

この製造方法においては、このような延伸装置を単独で用いて行つてもよいし、また複数個連結して段階的に延伸処理してもよい。さらに、必要に応じ予熱器、冷却器、洗浄器、熟成器などを組み込むこともできる。以上は連続式に行う例であるが、所望ならばバッチ式で行うこともできる。

以上のようにすれば、流体を介して加圧、加熱を行うので、ポリアセタール成形体の全表面から均質に加圧、加熱が行われ、かつ延伸時に発生する熱も速やかに除去される結果、フィブリル化を抑制して高倍率の延伸が達成され、延伸方向に裂けにくく、かつ横方向の外力に対しても安定な、250Pa以上の高い弾性率と低い線膨張率を有するポリアセタールが得られる。

このようにして得られる本発明成形材料は、高密度、高弾性率を有する上に、高硬度であり、また延伸方向に対して裂けにくく、バラチを生じないという長所を有している。さらに従来のポリアセタール延伸体は、これを延伸方向に引張つて破断させた際、その破断部分が竹ぼうき状に開いた多数のフィブリルが観察されるのに対し、本発明成形材料は、金属の破断面のような状態となりフィブリルは認められない。そして、本発明成形材料は、従来のポリアセタール延伸体と比較したとき、延伸方向の引張強度は約50%も高く、横方向の強度例えば曲げ強度は約100%も高くなつてゐる等非常に優れた物性を有している。

本発明成形材料は、丸棒、角棒、異形体、チューブ、シート、板、テープ、糸、フィルムなど任意の形状に加工しうるので、高強度を要求されるロープ、漁網などの産業資材、高弾性率、低線膨張率を要求される光ファイバー用のテンションメンバーや記録用テープなど多方面にわたつて広く使用することができる。

特開昭60-183121 (5)

次に実施例により本発明をさらに詳細に説明する。

なお、実施例中の密度は、JIS K 7112-1980の水中置換法により、温度20±0.5℃において測定した。また、引張弾性率は、バイブロンⅢBA型（東洋ボールドウィン社製）を用い、23℃において測定した。引張強度と引っかけ強度はインストロン引張試験機を用い、23℃で測定した。これらの数値の算出に必要な延伸体の断面積は、JIS K 7113-1981に準じ、一定長の試料の重量と、前記のようにして求めた密度を用いて計算した。透明性は透明度試験法（JIS K 7105-1981）により測定した。その算出に必要な延伸体の断面積は、一定長の試料の重量と前記の方法で測定した密度とから求めた。

実施例1

テナック3010（旭化成株式会社製ポリアセタールの登録商標名、密度1.42（常圧）、軟化点174℃（常圧））のテープ（厚み0.5mm、巾15mm）を、加圧流体としてシリコンオイルを用い、

第1表に示す処理条件下において2段階で10～35倍の延伸比に延伸した。このようにして得た各試料についての密度、引張弾性率、引張強度を第1表に示す。

なお、比較のために、常圧下で延伸したものについての結果も併記した。

第 1 表

試料 No	延 伸 条 件			密 性		
	前 良 部 延伸温度(℃)	後 良 部 延伸温度(℃)	圧力(kg/cm ²)	密度 (g/cm ³)	引張弾性率 (0.2%)	引張強度 (0.2%)
1	145	100	150	1.42	25	1.1
2	"	"	155	"	30	1.2
3	"	"	155	"	35	1.3
4	"	"	160	"	40	1.4
5	"	"	165	"	42	1.4
6	"	"	165	"	45	1.5
7	"	"	167	"	50	1.6
8	"	"	150	1.39	25	1.1
9	"	"	155	"	30	1.2
10	"	"	155	"	35	1.3
11	"	"	160	"	40	1.4
12	"	"	163	"	42	1.4
13	"	"	165	"	45	1.5
14	"	"	165	"	50	1.6
15	"	"	163	1.36	40	1.4
16	"	"	163	"	42	1.4
17	"	"	165	"	45	1.5
18	"	"	165	"	50	1.5
19	"	"	163	1.29	40	1.2
20	"	"	163	"	45	1.3
21	"	"	165	"	50	1.4
22	"	"	165	1.21	50	1.5
23※	"	"	163	1.36	25	0.9
24※	"	"	163	1.15	42	1.0

※ 比較例

この結果を、引張弾性率 (GPa) と密度変化率 (%) との関係を表すグラフとして第1図に示した。このグラフから明らかなように、本発明の成形材料 (黒点で示す) はいずれも、引張弾性率 25 ~ 50 GPa、及び

$$\gamma \geq 110 - 0.52x$$

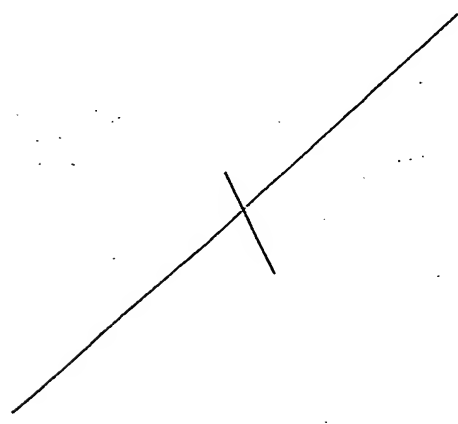
(ただし γ は密度変化率、 x は引張弾性率) の範囲内にあり、従来のポリアセタール (白点で示す) はその範囲外にある。

次に、これらの試料について延明度試験法により曇価を測定したところ、No 1 ~ 7 は曇価 20 % 以上、No 8 ~ 14 は曇価 40 % 以上でいずれも透明であつたが、No 15 ~ 18 は曇価 80 % 以上で半透明であつた。このことから、密度変化率 96 % 以上のものは透明性の良好な成形材料であることが分る。

実施例 2

実施例 1 と同様にしてテナック 4010 (旭化成工業株式会社製 ポリアセタールの登録商標名、

密度 1.42 g/cm^3 (常圧)、軟化点 174°C (常圧)) のロッド (外径 6 mm ϕ) を 10 ~ 30 倍に引張延伸した。この際の延伸条件及び得られた成形材料の物性を第2表に示す。



第 2 表

試料 No	延 伸 条 件		物 性						
	前 段 部	後 段 部	密 度 (g/cm^3)	引張弾性率 (0.2%)	引張強度 (0.2%)	引つか け強度 (0.2%)	透明性		
1	150	100	1.66	800	1.42	50	1.6	0.50	透明
2	"	"	165	500	1.42	45	1.5	0.45	"
3	"	"	163	300	1.36	45	1.4	0.35	半透明
4	"	"	155	100	1.42	25	1.1	0.25	透明
5	"	常圧	163	常圧	1.25	35	1.0	0.15	半透明

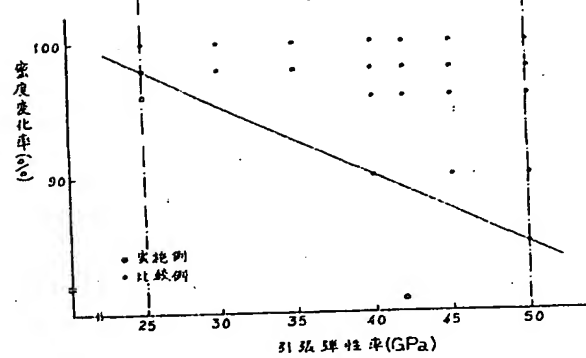
※ 比較例

上記の試料 No 2 と No 5 (比較例) について、延伸方向に平行な方向で引裂いた断面の電子顕微鏡 4000 倍拡大写真図を第3図 (a)、(b) に、延伸方向に垂直な方向に X 線を照射したときの小角 X 線散乱図を第4図 (a)、(b) に、広角 X 線散乱図を第5図 (a)、(b) にそれぞれ示す。

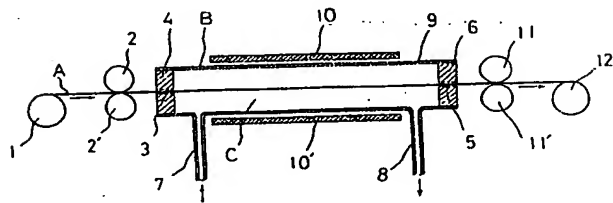
この第3図から明らかなように、比較例のものはフィブリルが延伸方向に配列し、かつ大きなボイドが存在するのが認められるのに対し、実施例のものはフィブリルやボイドの存在はほとんど認められない。また、第4図及び第5図から明らかなように、比較例のものは小角 X 線では赤道線上にストリーク状散乱が認められ、広角 X 線では広角 X 線ではスポットが広がり同心円状のリングが認められるのに対し、実施例のものは小角 X 線では赤道線上の散乱が弱く、広角 X 線ではスポットがきわめて小さい上に、同心円状のリングは全く認められない。

以上の事実から、本発明成形材料はフィブリル化が抑制され、ほぼ完全に結晶化した密な構造

第 1 図



第 2 図



を有し、かつ延伸方向の結晶配向性がきわめて高いものであることが分る。

4. 図面の簡単な説明

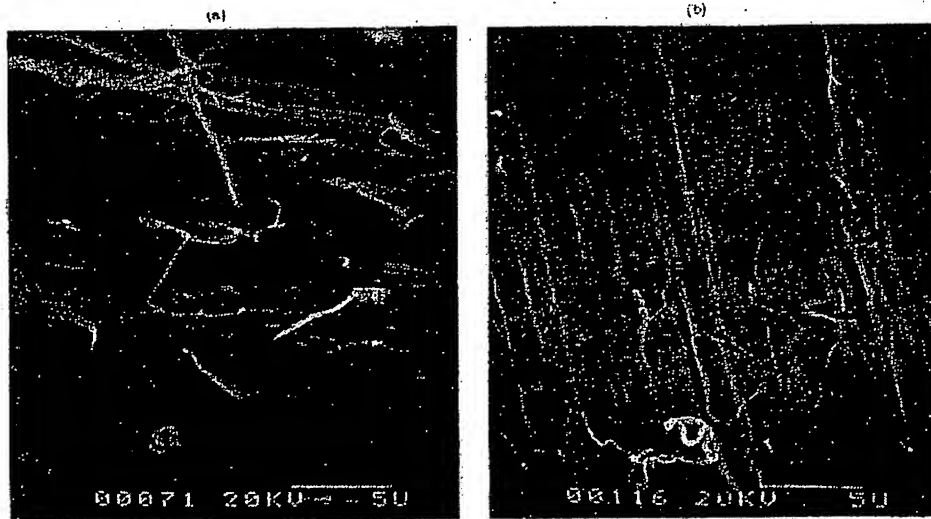
第1図は本発明成形材料の分布領域を示すグラフ、第2図は本発明成形材料の製造に用いるのに適した装置の1例を示す断面略解図、第3図、第4図及び第5図は本発明成形材料と従来のポリアセタールについての引裂き断面の結晶構造を示す顕微鏡写真拡大図、小角X線散乱写真図及び広角X線散乱写真図である。

第2図中の符号は次のとおりである。

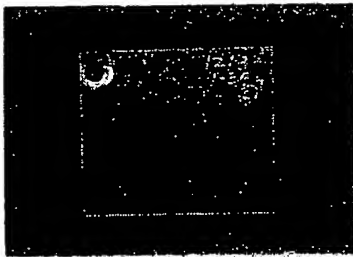
- | | |
|-----------|----------------|
| A : 長尺シート | 5 : 取出口 |
| B : 延伸装置 | 7 : 媒体導入口 |
| C : 加圧流体 | 8 : 媒体排出口 |
| 1 : 繰出ローラ | 10, 10' : ヒーター |
| 2 : 供給口 | 12 : 巻取ローラ |

特許出願人 旭化成工業株式会社
代理人 阿形明

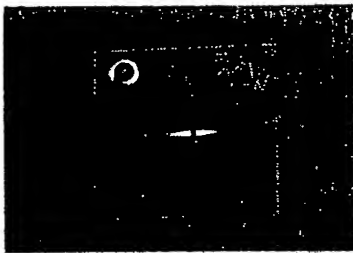
第 3 図



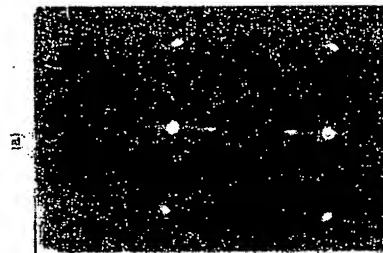
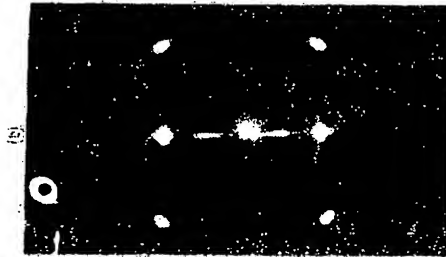
第 4 図



(a)



第 5 図



手 承 知 照 明

昭和59年5月10日

特許庁長官 若 杉 和 夫 殿

1. 事件の表示

昭和59年特許第38398号

2. 発明の名称

高弾性率ポリアセタール成形材料

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番6号

(003)旭化成工業株式会社

代表者 宮 崎 輝

4. 代 理 人

東京都港区新橋2丁目2番2号川志満・邦信ビル8階

(7182)弁理士 阿 形 明

電話(591)9910番

5. 補正命令の日付 自 発

6. 補正により増加する発明の数 0

7. 補正の対象 明細書の発明の詳細な説明の欄

8. 補正の内容

(1) 明細書第15ページ第7~8行目の「…インストロン引張試験機を用い、23℃で測定した。」を「…インストロン引張試験機を用い、JIS K 7113-1981に準じて23℃で測定した。」に訂正します。

(2) 同第15ページ第10行目の「JIS K 7113-1981に準じ、」を削除します。

(3) 同第15ページ第13行目~15行目の「その算出に…密度とから求めた。」を削除します。

(4) 同第18ページ第11~13行の「…は曇価20%以上、…曇価30%以上で」を「…は曇価20%以下、No. 8~14は曇価40%以下でいずれも透明であったが、No. 15~18は曇価80%以下で」に訂正します。